

BEST AVAILABLE COPY

(D1)

(19) BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

(12) Patentschrift  
(11) DE 26 24 302 C 2

(51) Int. Cl. 4:  
F23C 11/02  
C 22 B 1/10

(21) Aktenzeichen: P 26 24 302.7-13  
(22) Anmeldetag: 31. 5. 76  
(43) Offenlegungstag: 22. 12. 77  
(45) Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung: 23. 4. 87

DE 26 24 302 C 2

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

(73) Patentinhaber:  
Metallgesellschaft AG, 6000 Frankfurt, DE

(72) Erfinder:  
Reh, Lothar, Dipl.-Ing. Dr., 6000 Bergen, DE; Hirsch,  
Martin, Dipl.-Ing., 6000 Frankfurt, DE; Plass, Rudolf,  
Dipl.-Ing. Dr., 6242 Kronberg, DE

(56) Im Prüfungsverfahren entgegengehaltene  
Druckschriften nach § 44 PatG:  
DE-PS 2539546, DE-OS 1767628, AT 201294,  
AT 193607, GB 784595, US 3921590, US 3672069,  
AU 164429,  
DE-Z.: Chemie-Ing.-Techn. 46. Jahrg., 1974, Nr.  
5, S. 180-189; US-Z.: AICHE Symposium Series Vol.  
70. 1974, Nr. 141, S. Symposium Series Vol. 68,  
1972, Nr. 126, S. 259-266;



(54) Verfahren zur Durchführung exothermer Prozesse

DE 26 24 302 C 2

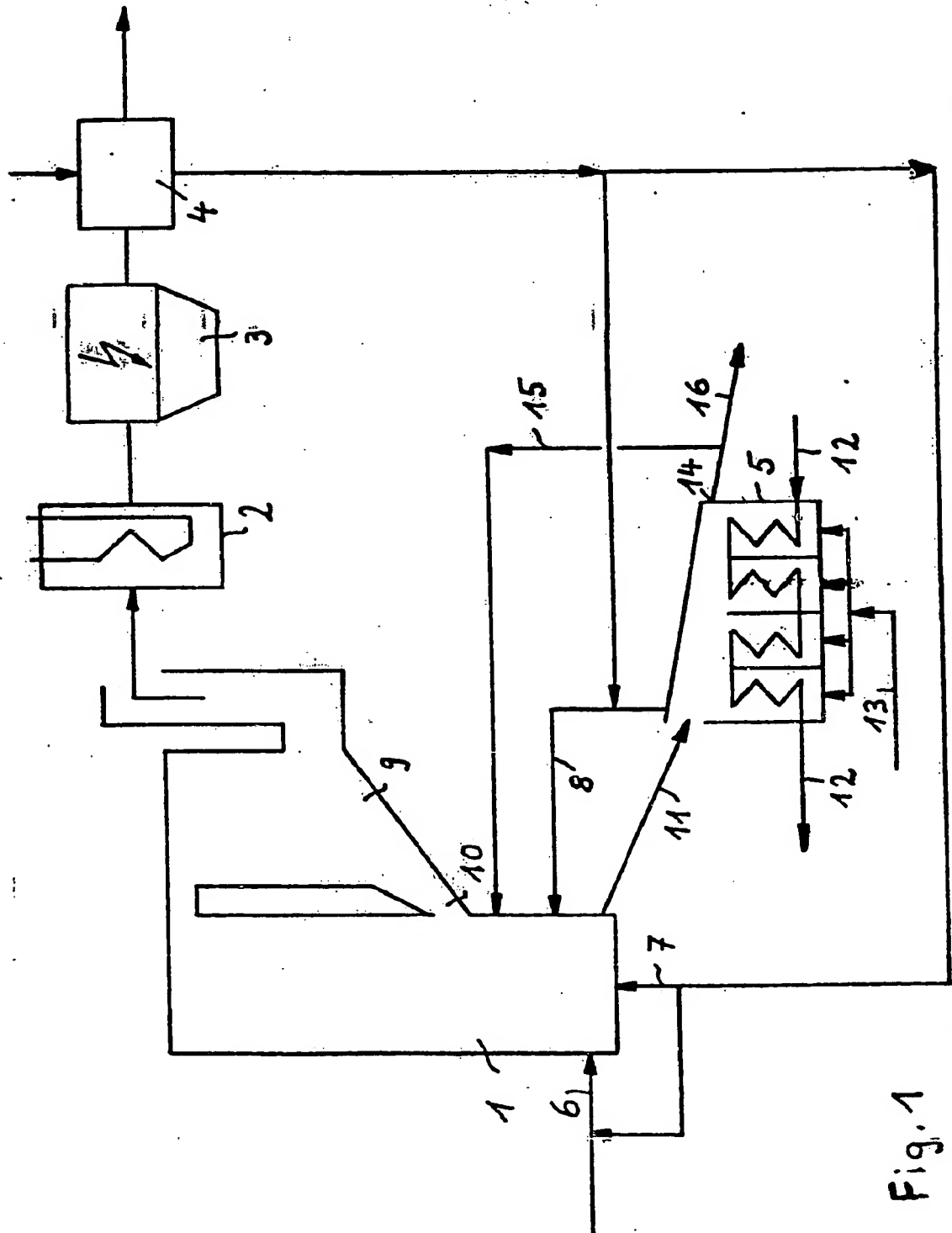


Fig. 1

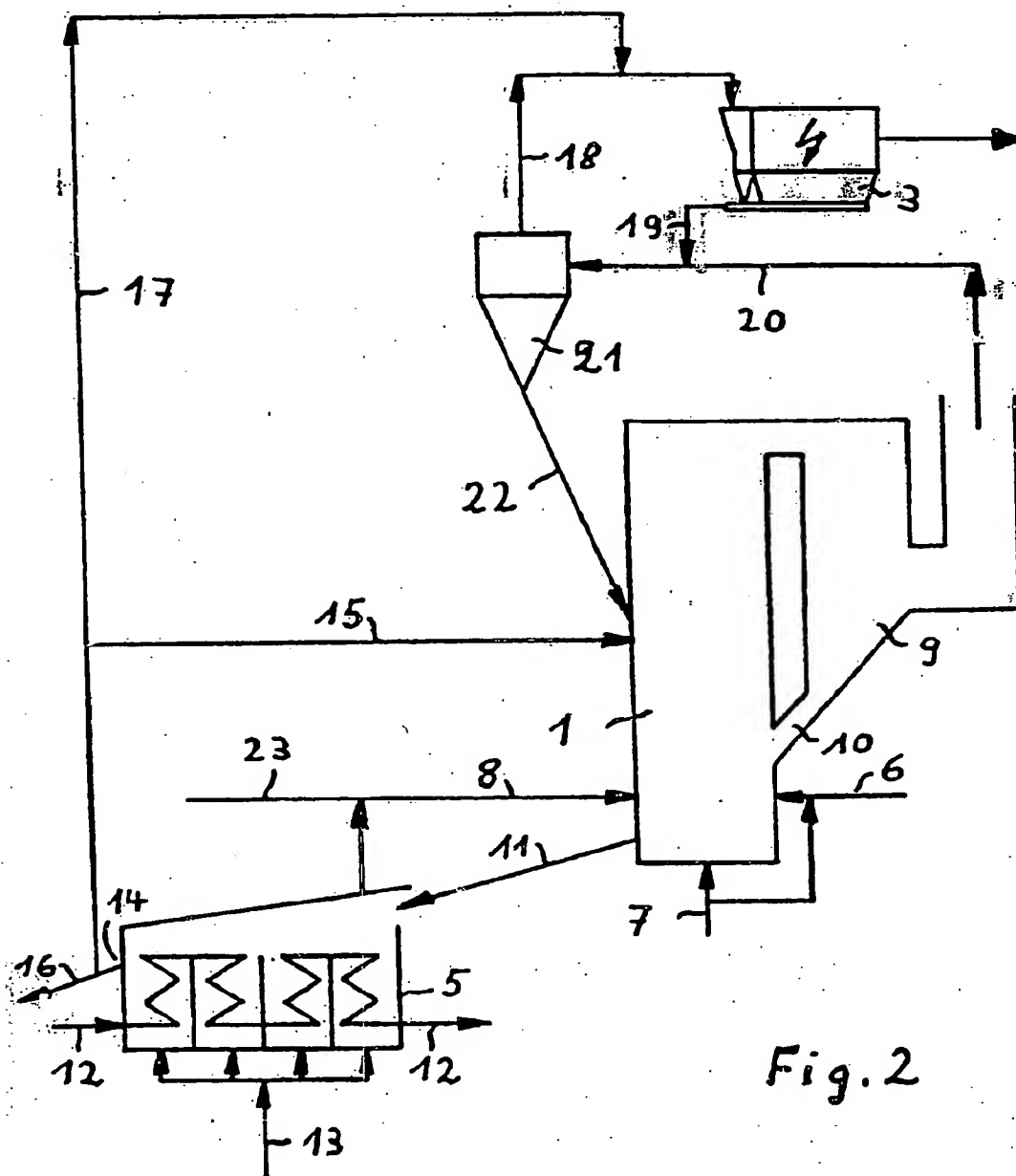
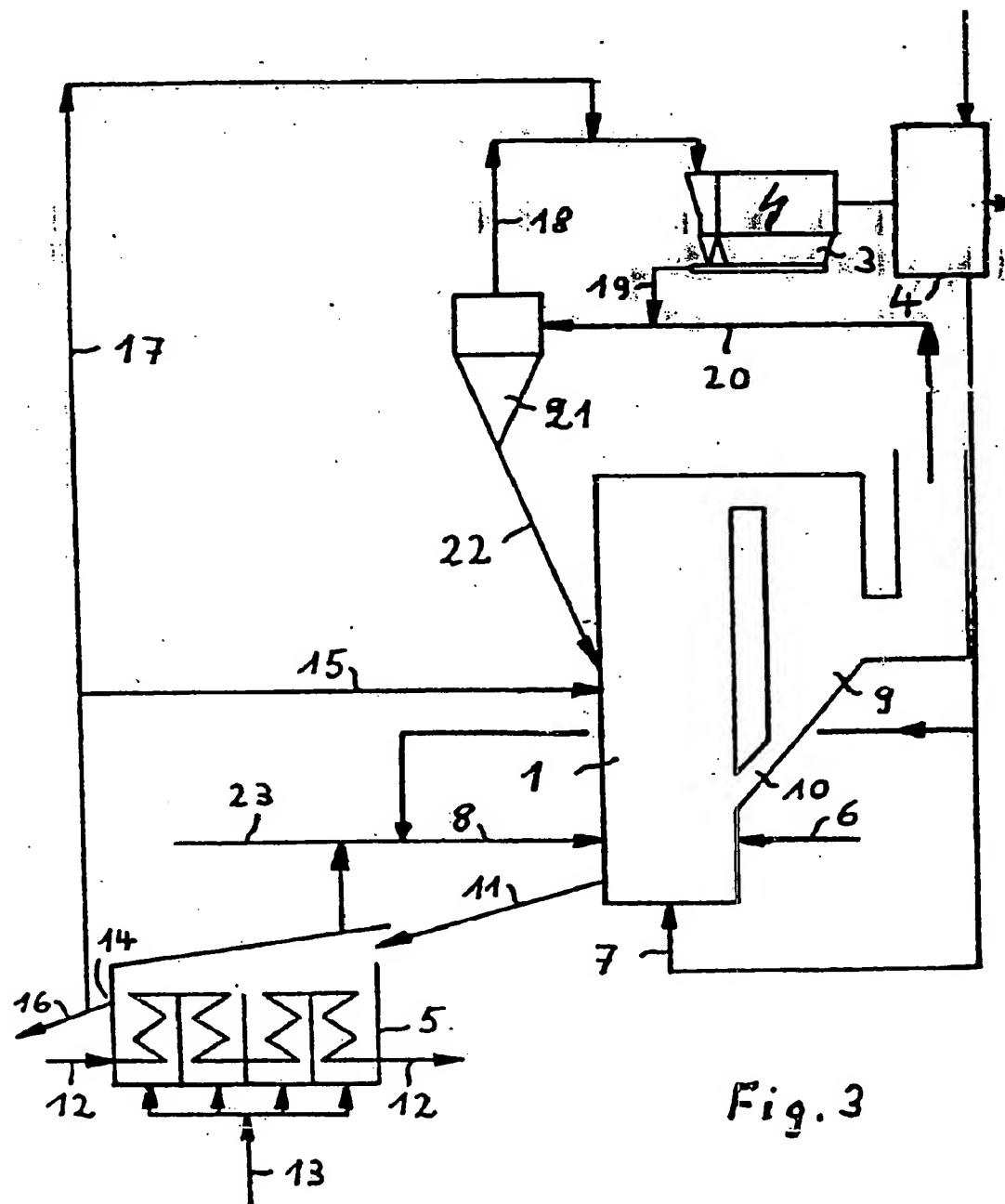


Fig. 2



## Patentansprüche

1. Verfahren zur Durchführung exothermer Prozesse mit nahstöchiometrischer Verbrennung der brennbaren Bestandteile der angegebenen Materialien in einem Wirbelschichtreaktor mit zirkulierender Wirbelschicht, Entnahme eines Teils der umlaufenden Feststoffe aus dem aus Wirbelschichtreaktor, Abscheider und Rückführleitung gebildeten Zirkulationssystem und Abführung von Verbrennungswärme, wobei die Verbrennung mit zwei in unterschiedlicher Höhe zugeführten Teilströmen sauerstoffhaltiger Gase durchgeführt wird, von denen mindestens ein Teilstrom als Sekundärgas in eine oder mehrere übereinanderliegende Ebenen des Wirbelschichtreaktors gelangt, und wobei das Volumenverhältnis von Fluidisierungsgas zu Sekundärgas auf einen Wert von 1 : 20 bis 2 : 1 eingestellt sowie der überwiegende Teil des aufzugebenden Materials in den unterhalb der Sekundärgaszuführung befindlichen einbautenfreien Teil des Reaktorraums eingetragen wird, dadurch gekennzeichnet, daß oberhalb der Sekundärgaszuführung durch Einstellung der Fluidisierungs- und Sekundärgasmenge eine mittlere Suspensionsdichte von 10 bis 40 kg/m<sup>3</sup> eingestellt wird, daß die entnommenen Feststoffe zwecks Abführung des überwiegenden Teils der Verbrennungswärme in einem Wirbelschichtkühler von einem Wirbelgas direkt und einem Kühlmittel indirekt gekühlt werden, daß mindestens ein Teilstrom des gekühlten Feststoffs in den Wirbelschichtreaktor zur Einstellung einer konstanten Temperatur zurückgeführt wird und daß das aus dem Wirbelschichtkühler austretende heiße Wirbelgas als Sekundärgas in den Wirbelschichtreaktor gelangt, wo es zur nahstöchiometrischen Verbrennung der brennbaren Bestandteile beiträgt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das den Wirbelschichtreaktor verlassende Abgas durch Eintragung von im Wirbelschichtkühler gekühlten Feststoffen gekühlt wird.
3. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teilstrom der gekühlten Feststoffe direkt und ein weiterer Teilstrom indirekt nach Kühlung der Abgase in den Wirbelschichtreaktor eingetragen wird.
4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß dem Wirbelschichtreaktor ein Teilstrom der sauerstoffhaltigen Gase als Fluidisierungsgas zugeführt wird.
5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die oberste Sekundärgaszuführung in einer Höhe bis 30%, bezogen auf die Gesamthöhe des Wirbelschichtreaktors, mindestens jedoch 1 m über der Einführung des Fluidisierungsgases erfolgt.
6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die dem Zirkulationssystem entnommenen Feststoffe in einem Wirbelschichtkühler mit mehreren nacheinander durchflossenen Kühlkammern, in die miteinander verbundene Kühlregister eintauchen, im Gegenstrom zum Kühlmittel gekühlt werden.
7. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß bei Aufgabe kohlenstoffhaltiger Materialien die Verbrennung in Gegenwart eines feinkörnigen Entschwefelungsmittels durchgeführt

führt wird, dessen Körnigkeit etwa der des kohlenstoffhaltigen Materials entspricht.

8. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbrennung mit mit Sauerstoff angereicherter Luft durchgeführt wird.
9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbrennung unter Druck, vorzugsweise bis 21 bar, durchgeführt wird.

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Durchführung exothermer Prozesse mit nahstöchiometrischer Verbrennung der brennbaren Bestandteile der angegebenen Materialien in einem Wirbelschichtreaktor mit zirkulierender Wirbelschicht, Entnahme eines Teils der umlaufenden Feststoffe aus dem aus Wirbelschichtreaktor, Abscheider und Rückführleitung gebildeten Zirkulationssystem und Abführung von Verbrennungswärme, wobei die Verbrennung mit zwei in unterschiedlicher Höhe zugeführten Teilströmen sauerstoffhaltiger Gase durchgeführt wird, von denen mindestens ein Teilstrom als Sekundärgas in eine oder mehrere übereinanderliegende Ebenen des Wirbelschichtreaktors gelangt, und wobei das Volumenverhältnis von Fluidisierungsgas zu Sekundärgas auf einen Wert von 1 : 20 bis 2 : 1 eingestellt sowie der überwiegende Teil des aufzugebenden Materials in den unterhalb der Sekundärgaszuführung befindlichen einbautenfreien Teil des Reaktorraums eingetragen wird.

Ein derartiges Verfahren ist Gegenstand des deutschen Patents 25 39 546. Dieses Verfahren zur nahstöchiometrischen Verbrennung von kohlenstoffhaltigen Materialien in einem Wirbelschichtreaktor mit zirkulierender Wirbelschicht unter Abführung von Verbrennungswärme durch Kühlflächen im Reaktorraum und Entnahme von Feststoffen aus dem aus Wirbelschichtreaktor, Abscheider und Rückführleitung gebildeten Zirkulationssystem arbeitet in der Weise, daß man

- a) in an sich bekannter Weise die Verbrennung mit zwei Teilströmen, in unterschiedlicher Höhe zugeführten, sauerstoffhaltigen Gasen durchführt, von denen mindestens einer als Sekundärgas in eine oder mehrere übereinanderliegende Ebenen eingetragen wird,
- b) zwecks Beeinflussung des Wärmeübergangs an die Kühlflächen oberhalb der Sekundärgaszuführung eine mittlere Suspensionsdichte von 15 bis 100 kg/m<sup>3</sup> durch Einstellung der Fluidisierungs- und Sekundärgasmenge schafft, wobei das Volumenverhältnis von Fluidisierungsgas zu Sekundärgas auf einen Wert im Bereich von 1 : 20 bis 2 : 1 eingestellt wird,
- c) mindestens den überwiegenden Teil des kohlenstoffhaltigen Materials in den unterhalb der Sekundärgaszuführung befindlichen, praktisch einbautenfreien Teil des Reaktorraums einträgt und die Verbrennungswärme überwiegend mittels der oberhalb der Sekundärgaszuführung innerhalb des freien Reaktorraums befindlichen Kühlflächen abführt.

Eine besondere Ausführungsform dieses Verfahrens sieht vor, bei Verbrennung rückstandsreicher Brennstoffe die Rückstände in einem Wirbelschichtkühler unter Aufheizung von dem Wirbelschichtreaktor als Fluidisierungs- und/oder Sekundärgas dienendem Gas zu kühlen, so daß die Produktwärme der Feststoffe dem

Verbrennungsprozeß wieder zugeführt wird.

Aus der AU-PS 1 64 429 ist ein Verfahren bekannt, bei dem Erze in einer Wirbelschicht mit sauerstoffhaltigen Gasen geröstet werden, bei dem eine Kühlung der Gas-Feststoff-Suspension innerhalb des Wirbelschichtreaktors und/oder der Trennvorrichtung für die Gas-Feststoff-Suspension erfolgt und bei dem ein Teil der gekühlten Feststoffe in die Wirbelschicht zurückgeführt wird. Dieses bekannte Verfahren arbeitet ohne Aufteilung der zur Verbrennung erforderlichen sauerstoffhaltigen Gase, und die Temperatur im Wirbelschichtreaktor wird über die Kühlelemente gesteuert. Das Ziel des aus der australischen Patentschrift bekannten Verfahrens besteht darin, die größeren Feststoffteilchen, die noch nicht voll abgeröstet sind, in den Wirbelschichtreaktor zurückzuführen, um deren Verweilzeit zu erhöhen. Aus der US-PS 39 21 590 ist ferner ein Verfahren bekannt, bei dem die Verbrennung in einer ersten Wirbelschicht abläuft, bei dem das heiße gewirbelte Material dann in einer zweiten Wirbelschicht abgekühlt wird und bei dem schließlich das abgekühlte Material aus der zweiten Wirbelschicht in die erste Wirbelschicht zurückgeführt wird. Dieses bekannte Verfahren arbeitet allerdings nicht mit zirkulierenden, sondern mit konventionellen Wirbelschichten, die einen hohen Druckverlust verursachen. Außerordentlich nachteilig ist es aber, daß durch die in der US-PS 39 21 590 vorgeschlagene Kopplung von zwei konventionellen Wirbelschichten ein Teillastbetrieb praktisch verhindert wird, da bei der Verminderung der Brennstoffzufuhr mit zunehmendem Luftüberschuß gefahren werden muß, wodurch sich die Abgasmenge unvermeidbar erhöht und eine nahstochiometrische Verbrennung nicht mehr möglich ist. Schließlich ist es aus der US-PS 36 72 069 bekannt, daß Feststoffe aus der Wirbelschicht in einem Wirbelschichtkühler mit einem Gas abgekühlt werden können, wobei lediglich die Produktwärme der Feststoffe abgeführt wird.

Es hat sich gezeigt, daß das im Patent 25 39 546 vorgeschlagene Verfahren bei extremen Schwankungen des Leistungsbedarfs nur sehr schwer beherrschbar ist, da die Leistung dieses Verfahrens durch die Änderung der Suspensionsdichte der zirkulierenden Wirbelschicht nur in gewissen Grenzen an den Bedarf angepaßt werden kann. Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren der eingangs genannten Art zu schaffen, dessen Leistung an den schwankenden Bedarf angepaßt werden kann, ohne daß dazu ein erhöhter apparativer und verfahrenstechnischer Aufwand notwendig ist.

Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß oberhalb der Sekundärgaszuführung durch Einstellung der Fluidisierungsgas- und Sekundärgasmenge eine mittlere Suspensionsdichte von 10 bis 40 kg/m<sup>3</sup> eingestellt wird, daß die entnommenen Feststoffe zwecks Abführung des überwiegenden Teils der Verbrennungswärme in einem Wirbelschichtkühler von einem Wirbelgas direkt und einem Kühlmittel indirekt gekühlt werden, daß mindestens ein Teilstrom des gekühlten Feststoffs in den Wirbelschichtreaktor zur Einstellung einer konstanten Temperatur zurückgeführt wird und daß das aus dem Wirbelschichtkühler austretende heiße Wirbelgas als Sekundärgas in den Wirbelschichtreaktor gelangt, wo es zur nahstochiometrischen Verbrennung der brennbaren Bestandteile beiträgt.

Durch die Kombination der erfindungsgemäßen Verfahrensmerkmale wird eine schnelle und zuverlässige Anpassung der Reaktorleistung an den stark schwankenden Leistungsbedarf erreicht, und das Verfahren

zeichnet sich dadurch aus, daß der exotherme Prozeß mit hohen Durchsätzen bei sehr konstanter Temperatur durchgeführt werden kann. Die Temperaturkonstanz wird ohne Änderung der Suspensionsdichte allein durch Rückführung des gekühlten Feststoffs erreicht, wodurch eine schnelle Änderung der Leistung bei gleichzeitiger Aufrechterhaltung eines stabilen Zustands der zirkulierenden Wirbelschicht eintritt. Durch die Verwendung eines an sich bekannten Wirbelschichtkühlers, der mit hoher Suspensionsdichte betrieben wird und der den überwiegenden Teil der Verbrennungswärme abführt, kann die Suspensionsdichte im Wirbelschichtreaktor mit 10 bis 40 kg/m<sup>3</sup> niedrig gehalten werden, so daß der Druckverlust im gesamten System sehr gering ist. Erst der Einsatz eines Wirbelschichtkühlers ermöglicht eine niedrige Suspensionsdichte im Wirbelschichtreaktor und eine Rückführung von weitgehend abgekühltem Feststoff mit dem Ziel einer Leistungsregelung im Wirbelschichtreaktor. Es kommt hinzu, daß das aufgeheizte Gas des Wirbelschichtkühlers zur Durchführung der nahstochiometrischen Verbrennung herangezogen wird, so daß beim erfindungsgemäßen Verfahren ein nahezu sauerstoffreies Abgas mit hoher Temperatur anfällt.

Das den Wirbelschichtreaktor verlassende Abgas kann auf an sich bekannte Weise mittels eines Abhitze-kessels gekühlt werden. Nach der Erfindung ist es aber besonders vorteilhaft, wenn das den Wirbelschichtreaktor verlassende Abgas durch Eintrag von im Wirbelschichtkühler gekühlten Feststoffen gekühlt wird. Der vom Abgas später wieder abgetrennte Feststoff kann dann in den Wirbelschichtkühler zurückgeleitet werden, wodurch auch die Abgaswärme letztlich in den Wirbelschichtkühler gelangt.

Eine weitere bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß ein Teilstrom der gekühlten Feststoffe direkt und ein weiterer Teilstrom indirekt nach Kühlung der Abgase in den Wirbelschichtreaktor eingetragen wird. Aus den Wirbelschichtreaktor werden dann die Feststoffe, welche die Verbrennungstemperatur aufweisen, dem Wirbelschichtkühler wieder zugeleitet.

Als Fluidisierungsgas kann praktisch jedes beliebige, die Beschaffenheit des Abgases nicht beeinträchtigende Gas eingesetzt werden. Es sind z. B. Inertgase, wie rückgeführtes Rauchgas (Abgas), Stickstoff und Wasserdampf geeignet. Im Hinblick auf die Intensivierung des Verbrennungsprozesses ist es aber nach der Erfindung vorteilhaft, wenn dem Wirbelschichtreaktor ein Teilstrom der sauerstoffhaltigen Gase als Fluidisierungsgas zugeführt wird. Beim erfindungsgemäßen Verfahren ist es also möglich, als Fluidisierungsgas Inertgas oder sauerstoffhaltiges Gas zu verwenden. Im ersten Fall ist es unerlässlich, das sauerstoffhaltige Verbrennungsgas als Sekundärgas in mindestens zwei übereinanderliegenden Ebenen einzutragen. Im zweiten Fall genügt der Eintrag von Sekundärgas in einer Ebene, wobei aber auch bei dieser Ausführungsform eine Aufteilung des Sekundärgases in mehrere Ebenen erfolgen kann. Innerhalb jeder Eintragssebene sind mehrere Zuführungsöffnungen für Sekundärgas vorteilhaft.

In bevorzugter Ausführung des erfindungsgemäßen Verfahrens wird das Sekundärgas in einer Höhe bis 30%, bezogen auf die Gesamthöhe des Wirbelschichtreaktors, mindestens jedoch 1 m über der Einleitung des Fluidisierungsgases, zugeführt. Der Bezugspunkt für diese Maßnahme ist die Höhenlage der obersten Sekundärgasleitung, sofern das Sekundärgas in mehreren

Ebenen zugeführt wird. Diese erfindungsgemäße Höhe schafft einerseits einen hinreichend großen Raum für die erste Verbrennungsstufe mit nahezu vollständiger Umsetzung zwischen brennbaren Bestandteilen und sauerstoffhaltigem Gas, das als Fluidisierungsgas oder Sekundärgas in einer tiefer liegenden Ebene zugeführt wird, und bewirkt andererseits im oberen, über der Sekundärgaszuführung liegenden Reaktionsraum die Bildung einer ausreichend großen Ausbrandzone.

Nach der Erfindung ist es besonders vorteilhaft, wenn in dem Zirkulationssystem entnommenen Feststoffe in einem Wirbelschichtkühler mit mehreren nacheinander durchflossenen Kühlkammern, in die miteinander verbundene Kühlregister eintauchen, im Gegenstrom zum Kühlmittel gekühlt werden. Hierdurch gelingt es, die Verbrennungswärme an eine vergleichsweise kleine Kühlmittelmenge zu binden und überhitzten, wirtschaftlich einsetzbaren Wasserdampf zu erzeugen. Ein derartiger Wirbelschichtkühler ist aus der US-PS 36 72 069 an sich bekannt.

Um bei der Verbrennung kohlenstoffhaltiger Materialien den Schwefelgehalt im Abgas gering zu halten, ist nach der Erfindung vorgesehen, daß die Verbrennung in Gegenwart eines feinkörnigen Entschwefelungsmittels durchgeführt wird, dessen Körnigkeit etwa der des kohlenstoffhaltigen Materials entspricht. Als Entschwefelungsmittel können Dolomit, Calciumoxid oder Calciumkarbonat verwendet werden. Die Entschwefelungsmittel können gemeinsam mit dem kohlenstoffhaltigen Material oder mit den gekühlten Feststoffen in den Wirbelschichtreaktor eingetragen werden. Die in der zirkulierenden Wirbelschicht herrschende konstante Temperatur wirkt sich auch bei der Entschwefelung positiv aus, da die von der Temperatur abhängige Entschwefelungskapazität des Entschwefelungsmittels auf einen konstanten Wert eingestellt werden kann. Die hohe Feinkörnigkeit des Entschwefelungsmittels ergänzt diesen Vorteil, da das Verhältnis von Oberfläche zu Volumen für die im wesentlichen durch die Diffusionsgeschwindigkeit bestimmte Bindungsgeschwindigkeit des Schwefeldioxids besonders günstig ist.

Leistungssteigerungen lassen sich bei vorgegebenen Reaktorabmessungen dann erzielen, wenn die Verbrennung in weiterer Ausgestaltung der Erfindung mit Sauerstoff angereicherter Luft und/oder unter Druck, vorzugsweise bis 21 bar, durchgeführt wird.

Das beim erfindungsgemäßen Verfahren angewendete Wirbelschichtprinzip zeichnet sich dadurch aus, daß — im Unterschied zur klassischen Wirbelschicht, bei der eine dichte Phase durch einen deutlichen Dichtesprung von dem darüber befindlichen Gasraum getrennt ist — Verteilungszustände ohne definierte Grenzschicht vorliegen. Ein Dichtesprung zwischen dichter Phase und darüber befindlichem Staubraum ist nicht vorhanden; jedoch nimmt innerhalb des Reaktors die Feststoffkonzentration von unten nach oben ständig ab. Bei der Definition der Betriebsbedingungen für die zirkulierende Wirbelschicht über die Kennzahlen von Froude und Archimedes ergeben sich folgende Bereiche:

$$0,1 \leq \frac{3u^2}{4g \cdot d_k} \cdot \frac{\rho_k}{\rho_k - \rho_g} \leq 10$$

bzw.

$$0,01 \leq Ar \leq 100$$

wobei

$$Ar = \frac{d_k^3 \cdot g(\rho_k - \rho_g)}{\rho_k \cdot \nu^2}$$

und

$$Fr^2 = \frac{u^2}{g \cdot d_k}$$

sind.

Es bedeuten:

$Fr$  Froudezahl,

$u$  relative Gasgeschwindigkeit (m/sec),

$Ar$  Archimedeszahl,

$\rho_g$  Dichte des Gases (kg/m<sup>3</sup>),

$\rho_k$  Dichte des Feststoffteilchens (kg/m<sup>3</sup>),

$d_k$  Durchmesser des kugelförmigen Teilchens (m),

$\nu$  kinematische Zähigkeit (m<sup>2</sup>/sec),

$g$  Gravitationskonstante (m/sec<sup>2</sup>).

Die Verbrennungstemperaturen lassen sich beim erfindungsgemäßen Verfahren von sehr niedrigen Temperaturen, die nahe oberhalb der Zündgrenze liegen, bis zu sehr hohen Temperaturen, die durch Erweichung der Verbrennungsrückstände oder des inerten Wirbelgutes begrenzt sind, beliebig einstellen. In der Praxis liegt der Temperaturbereich etwa zwischen 450 bis 1200° C. Selbst bei tiefen Verbrennungstemperaturen, die aus mancherlei Gründen zweckmäßig sind, wird eine hohe Temperaturkonstanz und eine nahstöchiometrische Verbrennung erreicht. Da die Entnahme der bei der Verbrennung gebildeten Wärme überwiegend im nachgeschalteten Wirbelschichtkühler erfolgt, ist ein Wärmeübergang auf im Wirbelschichtreaktor befindliche Kühlelemente, der eine hinreichend hohe Suspensionsdichte zur Voraussetzung hat, von untergeordneter Bedeutung. Der Wärmeentzug im Wirbelschichtkühler erfolgt unter Bedingungen, die einen extrem hohen Wärmeübergang, etwa im Bereich von 400 bis 500 W/m<sup>2</sup> · °C, bewirken. Dies gelingt, weil der Wirbelschichtkühler unter optimalen Bedingungen, insbesondere mit hoher Suspensionsdichte, betrieben werden kann. Nachteilige Einflüsse durch Nachverbrennung, Überhitzung und Korrosion, die bei der bekannten Kühlung im Wirbelschichtreaktor berücksichtigt werden müssen, sind beim erfindungsgemäßen Verfahren weitgehend ausgeschaltet. Zwar sind zum Betrieb des Wirbelschichtkühlers mit der dort herrschenden Suspensionsdichte unter höherem Druck stehende Fluidisierungsgase erforderlich; aber im Hinblick darauf, daß die dem Wirbelschichtreaktor und dem Wirbelschichtkühler jeweils als Fluidisierungsgas zuzuführenden Gasmengen auf ein Verhältnis von etwa 4:1 bis 1:1, vorzugsweise auf 2,5:1, eingestellt werden können, macht der Gasbedarf mit höherem Druck einen nur relativ geringen Anteil von im Mittel etwa 30% oder weniger aus, weniger



dann, wenn dem Wirbelschichtreaktor Sekundärgas zugeführt wird, das nicht aus dem Wirbelschichtkühler stammt. Etwa 70% oder entsprechend mehr der zur Verbrennung erforderlichen sauerstoffhaltigen Gase können mit einem relativ geringen Druck in den Wirbelschichtreaktor eingetragen werden. Als flüssiges Kühlmittel wird im Wirbelschichtkühler vorzugsweise Wasser verwendet, das den Wirbelschichtkühler als Dampf verläßt.

Die Aufteilung der insgesamt zur Verbrennung des aufgegebenen Materials erforderlichen sauerstoffhaltigen Gase auf zwei in unterschiedlicher Höhe zugeführte Teilströme bewirkt, daß die Verbrennung in zwei Stufen erfolgt. Hierdurch wird eine "weiche" Verbrennung erreicht, d. h., eine Verbrennung ohne lokale Überhitzungserscheinungen, die sowohl Krustenbildungen vermeidet als auch die Entstehung von Stickoxiden auf Werte unter 100 ppm zurückdrängt. Durch das Fehlen von Einbauten im unteren, unter der Sekundärgaszuführung liegenden Reaktorraum wird eine schnelle und gleichmäßige Verteilung des eingetragenen Materials erzielt. Die schnelle Durchmischung mit den heißen gewirbelten Feststoffen gewährleistet zudem eine gute Zündung. Durch die Verwendung von brennbarem Material mit einem Korndurchmesser von 30 bis 250 µm wird eine kurze Reaktionszeit erreicht. Der der Verbrennung dienende Wirbelschichtreaktor kann einen rechteckigen, quadratischen oder kreisförmigen Querschnitt aufweisen. Der untere Bereich des Wirbelschichtreaktors kann auch konisch ausgebildet sein, was insbesondere bei großen Reaktorquerschnitten und bei Verwendung von Inertgas als Fluidisierungsgas vorteilhaft ist. Die im Wirbelschichtreaktor oberhalb der Sekundärgaszuführung herrschenden Gasgeschwindigkeiten liegen bei Normaldruck im Regelfall über 5 m/sec und können bis zu 15 m/sec betragen. Das Verhältnis von Durchmesser zu Höhe des Wirbelschichtreaktors sollte derart gewählt werden, daß Gasverweilzeiten von 0,5 bis 8,0 sec, vorzugsweise 1 bis 4 sec, erhalten werden.

Im allgemeinen wird es zweckmäßig sein, die Wandung des Wirbelschichtreaktors mit Kühlflächen zu versehen. Kühlflächen im freien Reaktorraum sind zwar möglich, aber von untergeordneter Bedeutung und können bei einem niedrigen Heizwert der Brennstoffe entfallen. Sofern Kühlflächen vorgesehen sind, sollten sie aus im Zwangsdurchlauf gekühlten Rohrwänden mit lichtem Rohrabstand von mindestens 150 mm, vorzugsweise 250 bis 500 mm, bestehen. Der Verlauf der Rohrachsen sollte dabei parallel zur Strömungsrichtung der Gas-Feststoff-Suspension sein, wodurch ein Minimum an Erosion entsteht. Die im Wirbelschichtreaktor angeordneten Kühlflächen haben für die Abführung der Prozeßwärme eine untergeordnete Bedeutung; sie üben lediglich eine stabilisierende Wirkung auf das Reaktionssystem aus.

Der Eintrag des Materials in den Wirbelschichtreaktor erfolgt zweckmäßig über eine oder mehrere Lanzen, z. B. durch pneumatisches Einblasen. Infolge der guten Quervermischung reicht eine vergleichsweise geringe Zahl an Eintragslanzen aus; bei kleineren Wirbelschichtreaktoren kann sogar mit einer Lanze gearbeitet werden. Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich insbesondere für die Verbrennung von kohlenstoffhaltigen Materialien (Kohle aller Art, Kohlewäsche, Räumaschen, Ölschiefer, Heizöl usw.). Bei Verwendung von Heizöl als kohlenstoffhaltiges Material ist ein Hilfsbett, z. B. aus feinkörnigem Sand, Kalk oder Dolomit,

erforderlich. Weitere Anwendungsbereiche des Verfahrens liegen in der Abröstung verschiedener sulfidischer Erze oder Erzkonzentrate. Sofern die eingesetzten Materialien wesentliche Rückstandsmengen enthalten, wird nach Durchlaufen des Wirbelschichtkühlers die überschüssige Menge aus dem System ausgeschleust.

Der Gegenstand der Erfindung wird anhand der Zeichnung und der Ausführungsbeispiele näher erläutert. Es zeigt

Fig. 1 Fließschema des erfindungsgemäßen Verfahrens mit Rückführung gekühlter Feststoffe in den Wirbelschichtreaktor.

Fig. 2 Fließschema des erfindungsgemäßen Verfahrens mit direkter und indirekter Rückführung der gekühlten Feststoffe.

Fig. 3 Fließschema des erfindungsgemäßen Verfahrens mit direkter und indirekter Rückführung der gekühlten Feststoffe und Vorwärmung des sauerstoffhaltigen Gases.

Gemäß Fig. 1 wird brennbares Material in den Wirbelschichtreaktor 1 über die Lanze 6 pneumatisch eingetragen. Im Wirbelschichtreaktor 1 wird der Wirbelzustand durch Zugabe von Fluidisierungsgas über die Leitung 7 und Sekundärgas über die Leitung 8 herbeigeführt bzw. aufrechterhalten. Während des herrschenden Wirbelzustands verbrennen die mit dem zugeführten Material aufgegebenen brennbaren Bestandteile zweistufig. Der überwiegende Teil des Verbrennungsrückstands wird mit den Gasen aus dem Wirbelschichtreaktor 1 ausgetragen und in einem Zyklonabscheider 9 vom Gas getrennt. Das Abgas gelangt dann über den Abhitzekeßel 2, in dem es auf eine für die nachfolgende Staubabscheidung geeignete Temperatur gekühlt wird, in den Elektrofilter 3 und schließlich über einen Vorwärmer 4 für sauerstoffhaltiges Gas in den Kamin, der in der Zeichnung nicht dargestellt ist. Das vorgewärmte sauerstoffhaltige Gas wird dem Wirbelschichtreaktor 1 teils als Sekundärgas über die Leitung 8, teils als Fluidisierungsgas über die Leitung 7 und teils als Fördergas zum pneumatischen Eintrag des aufzugebenden Materials über die Leitung 6 zugeführt. Der im Zyklonabscheider 9 anfallende Feststoff wird zur Aufrechterhaltung des Wirbelzustands dem Wirbelschichtreaktor 1 über die Leitung 10 wieder zugeführt. Gleichzeitig wird dem Wirbelschichtreaktor 1 Feststoff über die Leitung 11 entnommen und in den Wirbelschichtkühler 5 eingetragen, wo der Feststoff nacheinander vier Kammern durchfließt, die mit durchgehenden, in die einzelnen Kammern eintauchenden Kühlregistern 12 ausgestattet sind. Beim Durchlauf des Feststoffs wird die Verbrennungswärme teils an das in die Kühlregister 12 eingeführte Speisewasser unter Bildung von Dampf und teils an die Wirbelgase, die über die Leitung 13 zugeführt werden, abgegeben. Der erzeugte Dampf wird einem geeigneten Verwendungszweck zugeführt. Der abgekühlte Feststoff, der dem Wirbelschichtkühler 5 über ein Austragsorgan 14 entnommen wird, gelangt teilweise über die Leitung 15 in den Wirbelschichtreaktor 1. Der Feststoffüberschuß, der bei konstanten Betriebsbedingungen dem unbrennbaren Rückstand des aufgegebenen Materials entspricht, wird über die Leitung 16 abgeführt. Das aus den vier Kammern des Wirbelschichtkühlers 5 austretende und unter dessen Haube gesammelte erhitzte Gas gelangt zusammen mit dem aus dem Vorwärmer 4 stammenden Teilgasstrom als Sekundärgas über die Leitung 8 in den Wirbelschichtreaktor 1.

Bei der Verfahrensführung gemäß Fig. 2 werden der Eintrag von Feststoff, Fluidisierungsgas und Sekundär-



gas über die Lanzen 6 bzw. die Leitungen 7 und 8 sowie die Verbrennung, der Austrag und die Abscheidung der Feststoffe entsprechend der Verfahrensführung gemäß Fig. 1 gestaltet. Auch der über die Leitung 11 entnommene Feststoff wird unter Erzeugung von Dampf und erhitztem Sekundärgas gekühlt und anschließend durch das Austragsorgan 14 dem Wirbelschichtkühler 5 entnommen sowie teilweise über die Leitung 16 abgeführt, wie es Fig. 1 zeigt. Der für die Rückführung in den Wirbelschichtreaktor 1 bestimmte Feststoffteilstrom wird gemäß Fig. 2 aber auf zwei Teilströme aufgeteilt, von denen einer über die Leitung 15 dem Wirbelschichtreaktor 1 direkt zugeführt wird, während der zweite Teilstrom über die Leitung 17 in die in den Elektrofilter 3 führende Abgasleitung 18 gelangt, wo er das Abgas unter Bildung einer Suspension kühlt und anschließend im Elektrofilter 3 abgeschieden wird. Der abgeschiedene Feststoff gelangt dann über die Leitung 19 in die das Abgas aus dem Zyklonabscheider 9 abführende Leitung 20, in der der Feststoff unter Vorabkühlung des Abgases weitere Wärme aufnimmt. Anschließend wird der Feststoff in einem weiteren Zyklonabscheider 21 abgetrennt und über die Leitung 22 in den Wirbelschichtreaktor 1 zurückgeführt. Bei der Verfahrensführung gemäß Fig. 2 ist eine Vorwärmung des für den Wirbelschichtreaktor 1 bestimmten Fluidisierungsgases nicht vorgesehen. Außerdem wird der aus dem Wirbelschichtkühler 5 entnommene und über die Leitung 8 in den Wirbelschichtreaktor 1 geführte Sekundärgasstrom durch weiteres, nicht vorgewärmtes, über die Leitung 23 herangeführtes sauerstoffhaltiges Gas verstärkt.

Die Verfahrensführung gemäß Fig. 3 unterscheidet sich von der in Fig. 2 dargestellten Verfahrensführung lediglich dadurch, daß hinter dem Elektrofilter 3 ein Vorwärmer 4 für sauerstoffhaltiges Gas angeordnet ist.

#### Beispiel 1 (mit Bezug auf Fig. 1)

Es wurde Kohleschiefer mit Luft verbrannt. Hierzu diente ein Wirbelschichtreaktor mit einer Grundfläche von  $1 \times 1$  m und 12 m Höhe. Der Reaktor wies keine Kühlfläche auf. Es wurden 7 t/h Kohleschiefer mit einem Heizwert von  $H_u = 760$  kcal/kg ( $= 3,2$  MJ/kg) und einem mittleren Korndurchmesser von 0,2 mm mittels  $700 \text{ Nm}^3/\text{h}$  Luft von  $250^\circ\text{C}$  über Leitung 6 pneumatisch eingetragen. Als Fluidisierungsgas wurden dem Wirbelschichtreaktor 1  $4000 \text{ Nm}^3/\text{h}$  Luft von  $250^\circ\text{C}$  über Leitung 7 zugeführt. Als Sekundärgas dienten  $4200 \text{ Nm}^3/\text{h}$  Luft, die auf  $268^\circ\text{C}$  aufgeheizt und mittels Leitung 8 in den Wirbelschichtreaktor 1 eingebracht worden waren. Die mittlere Suspensionsdichte im Wirbelschichtreaktor 1 unterhalb der Sekundärgaszuführung 8 betrug  $200 \text{ kg/m}^3$ , im darüber liegenden Raum  $15 \text{ kg/m}^3$ . Die Temperatur im gesamten aus Wirbelschichtreaktor 1, Zyklonabscheider 9 und Leitung 10 gebildeten Zirkulationssystem lag bei  $800^\circ\text{C}$ .

$17,6$  t/h heißer unbrennbarer Feststoff wurden dem Wirbelschichtkühler 5, der vier Kammern und durchlaufende Kühlregister 12 mit einer Kühlfläche von  $82 \text{ m}^2$  aufwies, über Leitung 11 aufgegeben. Als Fluidisierungsgas dienten  $\text{Nm}^3/\text{h}$  Luft, die sich auf  $280^\circ\text{C}$  aufheizte und dem Wirbelschichtreaktor 1 als Sekundärgas zugeführt wurde. Der gekühlte Feststoff wurde aus dem Wirbelschichtkühler 5 mit  $100^\circ\text{C}$  ausgetragen.

Zur Einstellung der Temperatur von  $800^\circ\text{C}$  im Zirkulationssystem wurde ein Teilstrom von  $11,6$  t/h Feststoff in den Wirbelschichtreaktor 1 über Leitung 15 zurück-

geführt.

Im Wirbelschichtkühler 5 wurden bei einer mittleren Materialkonzentration von  $500 \text{ kg/m}^3$  Wärmedurchgangszahlen von  $400 \text{ W/m}^2 \cdot ^\circ\text{C}$  erzielt und  $3,5 \cdot 10^6 \text{ W}$  zur Erzeugung von Sattdampf mit 60 bar über die Kühlflächen 12 abgeführt.

Zur Kühlung des aus dem Zylinderabscheider 9 austretende Abgases diente ein Abhitzekegel 2, in dem die Abgastemperatur auf  $300^\circ\text{C}$  gesenkt wurde. Mit dieser Temperatur gelangte das Abgas in den Elektrofilter 3 und in den Vorwärmer 4, in dem  $6400 \text{ Nm}^3/\text{h}$  Luft von  $50^\circ\text{C}$  auf  $250^\circ\text{C}$  unter Abkühlung des Abgases auf  $155^\circ\text{C}$  aufgeheizt wurden. Von der aufgeheizten Luft dienten  $1700 \text{ Nm}^3/\text{h}$  als weiteres Sekundärgas,  $4000 \text{ Nm}^3/\text{h}$  als Fluidisierungsgas und  $700 \text{ Nm}^3/\text{h}$  als Fördergas.

#### Beispiel 2 (mit Bezug auf Fig. 2)

Es wurde Pyrit mit Luft verbrannt. Hierzu diente der Wirbelschichtreaktor gemäß Beispiel 1, der jedoch an der Wandung oberhalb der Sekundärgaszuführung mit  $20 \text{ m}^2$  Kühlfläche ausgestattet war.

Es wurden  $3,1$  t/h Pyrit mit einem Heizwert von  $H_u = 1530$  kcal/kg ( $= 6,4$  MJ/kg) und 47 Gew.-% S mit einem mittleren Korndurchmesser von  $0,08$  mm mittels  $300 \text{ Nm}^3/\text{h}$  Luft  $0,2$  m über dem Rost über Leitung 6 pneumatisch eingetragen. Für den Wirbelschichtreaktor 1 dienten  $2500 \text{ Nm}^3/\text{h}$  Luft als Fluidisierungsgas, das über Leitung 7 eingetragen wurde, und  $4400 \text{ Nm}^3/\text{h}$  Luft als Sekundärgas, das über Leitung 8 zugeführt wurde. Die mittlere Suspensionsdichte unterhalb der Sekundärgaszuführung betrug  $150 \text{ kg/m}^3$ , im darüber liegenden Raum  $20 \text{ kg/m}^3$ .

Stündlich wurden über Leitung 11  $17,2$  t Abbrand (im wesentlichen  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) ausgetragen und im Wirbelschichtkühler 5, der vier Kammern und durchlaufende, in die einzelnen Kammern eintauchende Kühlregister 12 mit  $68 \text{ m}^2$  Kühlfläche aufwies, gekühlt. Zur Fluidisierung des Wirbelgutes dienten  $1700 \text{ Nm}^3/\text{h}$  Luft. Diese Luft erhitze sich auf  $300^\circ\text{C}$  und wurde dem Wirbelschichtreaktor 1 über Leitung 8 als Sekundärgas zugeleitet. Die Abbrandtemperatur nach Austrag über das Austragsorgan 14 lag bei  $100^\circ\text{C}$ .

Vom ausgetragenen Abbrand wurden  $2,5$  t/h über Leitung 15 direkt in den Wirbelschichtreaktor 1 eingetragen. Ein weiterer Teilstrom von  $12,5$  t/h wurde über Leitung 17 in die Gasleitung 18 eingetragen. Dadurch wurde das Abgas auf die im Hinblick auf den Säuretaupunkt zulässige Temperatur von  $350^\circ\text{C}$  gekühlt. Der Feststoff gelangte nach Abscheidung im Elektrofilter 3 über Leitung 19 in die Gasleitung 20 und nach erneuter Abscheidung im Zyklonabscheider 21 über Falleitung 22 schließlich in den Wirbelschichtreaktor 1. Durch die Rückführung des Feststoffes wurde im Zirkulationssystem bestehend aus Wirbelschichtreaktor 1, Zyklonabscheider 9 und Rückführleitung 10 eine Temperatur von  $900^\circ\text{C}$  erhalten.

Über Leitung 16 wurden stündlich  $2,2$  t Überschußabbrand ausgetragen. Sein Restschwefelgehalt lag bei 0,5 Gew.-% S.

Im Wirbelschichtkühler 5 herrschte eine Suspensionsdichte von  $500 \text{ kg/m}^3$ . Bei einer Wärmeübergangszahl von  $400 \text{ W/m}^2 \cdot ^\circ\text{C}$  wurden  $3,4 \cdot 10^6 \text{ W}$  Energie unter Erzeugung von Sattdampf mit 60 bar abgeführt.

In den Kühlflächen des Wirbelschichtreaktors 1 wurde Sattdampf von ebenfalls 60 bar entsprechend einer stündlichen Wärmemenge von  $1,2 \cdot 10^6 \text{ W}$  bei einer

Wärmeübergangszahl von  $90 \text{ W}^2 \cdot ^\circ\text{C}$  produziert. Von der insgesamt durch Abröstung des Pyrits stündlich erzeugten Wärmemenge von  $5,6 \cdot 10^6 \text{ W}$  wurden mithin  $4,6 \cdot 10^6 \text{ W}$  zur Erzeugung von Sattedampf ausgenutzt.

#### Beispiel 3 (mit Bezug auf Fig. 3)

Es wurden Öl mit Luft verbrannt. Hierzu diente ein Wirbelschichtreaktor gemäß Beispiel 1. Als Wirbelgut wurde Kalkstein mit einem mittleren Korndurchmesser von 0,1 bis 0,2 mm benutzt.

Über die Lanze 6 wurde 0,73 t/h Heizöl mit einem Heizwert von 9800 kcal/kg ( $= 41 \text{ MJ/kg}$ ) und einem Gehalt von 3,4 Gew.-% S eingetragen. Als Fluidisierungsgas dienten 3700 Nm<sup>3</sup>/h Luft mit 165°C und als Sekundärgas 4800 Nm<sup>3</sup>/h Luft mit 220°C. Die mittlere Suspensionsdichte im Wirbelschichtreaktor 1, im unterhalb der Sekundärgaszuführung 8 befindlichen Reaktorraum betrug 150 kg/m<sup>3</sup>, im darüber liegenden Raum 15 kg/m<sup>3</sup>. Die Temperatur im gesamten aus Wirbelschichtreaktor 1, Zyklonabscheider 9 und Leitung 10 gebildeten Zirkulationssystem lag bei 850°C.

37,9 t/h Wirbelgut wurden über Leitung 11 entnommen und dem Wirbelschichtkühler 5, der vier Kammern und durchlaufende, in die Kühlkammern eintauchende Kühlregister 12 mit einer Kühlfläche von 159 m<sup>2</sup> besaß, eingetragen. Unter Abführung von Wärme entsprechend  $8 \cdot 10^6 \text{ W}$  wurde Sattedampf mit 60 bar erzeugt und das Wirbelgut auf 100°C abgekühlt. Bei einer Fluidisierungsgasmenge von 2300 Nm<sup>3</sup>/h betrugen die Suspensionsdichte im Wirbelschichtkühler 5 500 kg/m<sup>3</sup> und die Wärmeübergangszahl  $400 \text{ W/m}^2 \cdot ^\circ\text{C}$ .

Zur Einstellung der Temperatur im Zirkulationssystem wurden 11,9 t/h aus dem Wirbelschichtkühler 5 ausgetragener Feststoff dem Wirbelschichtreaktor 1 über Leitung 15 zugeführt. 26 t/h gekühlter Feststoff dienten zur Kühlung des Abgases. Diese Feststoffmenge wurde zusammen mit 68 kg/h gebrannten Kalkes über Leitung 17 der Gasleitung 18 aufgegeben. Dadurch wurden die Abgase auf 200°C gekühlt und der Feststoff entsprechend aufgeheizt. Feststoff und Abgas wurden in einem Elektrofilter 3 mit Vorabscheider getrennt, der Feststoff über Leitung 19 der Gasleitung 20 zugeführt, wo er durch die Abgase des Reaktors auf 410°C vorgewärmt wurde. Nach der Trennung von Feststoff und Gas in einem Zyklonabscheider 21 wurde der Feststoff dem Wirbelschichtreaktor 1 über Leitung 22 zugeleitet.

Das aus dem Elektrofilter 3 austretende Abgas von 200°C wurde im nachgeschalteten Vorwärmer 4 unter Aufheizung von Luft auf 165°C auf 120°C abgekühlt. Der Schwefelgehalt im Abgas entsprach einem Entschwefelungsgrad von 90%.

Hierzu 3 Blatt Zeichnungen

55

60

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

This Page Blank (uspto)